

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-338763

(43)Date of publication of application : 27.11.2002

(51)Int.CI.

C08L 23/16
B32B 25/04
B60R 13/04
C08F210/18
C08K 5/103
C08L 83/05
C08L 83/06
C08L 83/07
C08L101/00

(21)Application number : 2001-152603

(71)Applicant : SHIN ETSU POLYMER CO LTD

(22)Date of filing : 22.05.2001

(72)Inventor : TSUJIHA HAJIME
HONDA MASAYUKI
YOSHIDA NAKAJIRO
NODA OSAYASU

(54) AUTOMOTIVE EXTERIOR PART

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an automotive exterior part which is prepared by using a thermoplastic olefin elastomer which has mechanical properties equal or superior to those of a halogenated polymer composition and is highly reliable since it has such durability and weather resistance as to enable the excellent mechanical properties to be retained for a long time.

SOLUTION: This automotive exterior part has a surface layer formed from a thermoplastic olefin elastomer having a Shore A hardness (specified by JIS K 6253) of 50-100. The thermoplastic olefin elastomer comprises hard segments consisting mainly of a thermoplastic polymer and soft segments consisting of an ethylene/α-olefin/diene copolymer cross-linked with an organohydrogenpolysiloxane. The ethylene/α-olefin/diene copolymer essentially contains vinylnorbornene-derived units as diene units. The thermoplastic olefin elastomer is prepared from 1-1,000 pts.wt. thermoplastic polymer, 100 pts.wt. ethylene/α-olefin/diene copolymer, and 0.1-15 pts.wt. organohydrogenpolysiloxane.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

[decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2002-338763
(P2002-338763A)

(43)公開日 平成14年11月27日 (2002.11.27)

(51)Int.Cl.
C 08 L 23/16
B 32 B 25/04
B 60 R 13/04
C 08 F 210/18
C 08 K 5/103

識別記号

F I
C 08 L 23/16
B 32 B 25/04
B 60 R 13/04
C 08 F 210/18
C 08 K 5/103

テーマコード(参考)
3 D 0 2 3
4 F 1 0 0
A 4 J 0 0 2
4 J 1 0 0

審査請求 未請求 請求項の数 7 OL (全 24 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2001-152603(P2001-152603)

(22)出願日 平成13年5月22日 (2001.5.22)

(71)出願人 000190116
信越ポリマー株式会社
東京都中央区日本橋本町4丁目3番5号

(72)発明者 辻邑一
埼玉県さいたま市吉野町1丁目406番地1
信越ポリマー株式会社商品研究所内

(72)発明者 本多雅之
埼玉県さいたま市吉野町1丁目406番地1
信越ポリマー株式会社東京工場内

(74)代理人 100093735
弁理士 荒井 錠司 (外2名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】自動車用外装部品

(57)【要約】

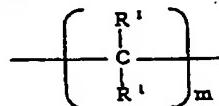
【課題】 ハロゲン系高分子組成物と同等またはそれ以上の機械的物性をもち、しかも、この機械的物性を長期にわたり保持しうる耐久性および耐候性を有するといった信頼性の高いオレフィン系熱可塑性エラストマーで構成された自動車用外装部品を提供する。

【解決手段】 JIS K 6253に規定するショアA硬度が50~100の範囲にあるオレフィン系熱可塑性エラストマーからなる表皮層が設けられており、上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、熱可塑性高分子を主成分とするハードセグメントと、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体とオルガノハイドロジェンポリシロキサンの架橋体からなるソフトセグメントで構成されており、上記エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体は、ジエン成分としてビニルノルボルネンを必須とし、上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、熱可塑性高分子1~1,000重量部、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体1,000重量部、オルガノハイドロジェンポリシロキサン0.1~15重量部からなる。

〔特許請求の範囲〕

〔請求項1〕 JIS K 6253に規定するショアーA硬度が50～100の範囲にあるオレフィン系熱可塑性エラストマーからなる表皮層が設けられており、上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、熱可塑性高分子を主成分とするハードセグメントと、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体とオルガノハイドロジェンポリシロキサンの架橋体からなるソフトセグメントで構成されており、上記エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体は、ジエン成分としてビニルノルボルネンを必須とし、上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、熱可塑性高分子1～1,000重量部、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部、オルガノハイドロジェンポリシロキサン0.1～15重量部からなることを特徴とする自動車用外装部品。

〔請求項2〕 ジエン成分の総量をX mol当量、ビニルノルボルネンの総量をY mol当量、非共役二重結合を有するビニルノルボルネン以外の原子団の総量をZ mol当量とした場合に、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体が、下記の数式1および数式2を満たす請求項1記載の自動車用外装部品。



$$* \text{ 数式1 : } Z \leq Y \leq 19Z$$

$$\text{数式2 : } Z + Y = X$$

〔請求項3〕 エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体のジエン成分がビニルノルボルネンのみから構成され、該エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体が、オルガノハイドロジェンポリシロキサンおよび下記の(a-1)、(a-2)、(a-3)から選択される少なくとも1つのジエン化合物と共に架橋している請求項1記載の自動車用外装部品。

- 10 (a-1) アクリロイル基を分子中に少なくとも5個もち、化1の構造単位を有さない化合物
 (a-2) アクリロイル基を分子中に2～5個もち、化2または化3の構造単位を有する化合物
 (a-3) アクリロイル基、メタクリロイル基、ビニル基、プロペニル基、ブテニル基、アリル基から選択される不飽和基を少なくとも2個以上もち、化1の構造単位を有する化合物

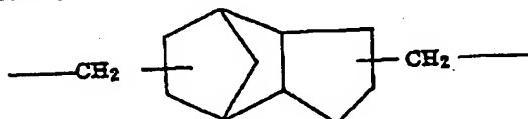
〔化1〕



* 〔化2〕

(式中、R¹は、水素原子または同一あるいは異種のC1～C3アルキル基、フェニル、キシリルを示し、mはmを3の連続した構造をもち、且つ炭素数の合計が7以上である。)

〔化3〕



〔請求項4〕 エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、下記の(b-1)、(b-2)、(b-3)、(b-4)から選択される少なくとも1つの共重合体または高分子系組成物が1.0～510重量部配合されてなる請求項3記載の自動車用外装部品。

(b-1) 密度が0.86～0.91g/cm³であるエチレン- α オレフィン共重合体

(b-2) 非結晶性プロピレン- α オレフィン共重合体
 (b-3) プロピレンにエチレン- α オレフィン共重合体を分散させた高分子系組成物

(b-4) 水素添加系ブロック共重合体

〔請求項5〕 オレフィン系熱可塑性エラストマーの破断強度が下記の数式3に示す関係を満たし、この関係を満たす破断強度が、サンシャインウェザーメーターにより1,000時間照射するJIS K 6266に規定する評価方法

(測定環境は83±2°C)において80%以上保持される請求項1～4のいずれか1項記載の自動車用外装部品。

$$\text{数式3 : } Ts > A \div 2 - 20 \quad (50 < A < 100)$$

Ts : JIS K 6253に規定する破断強度（測定温度は23±2°C）、単位はMPa

A : JIS K 6253に規定する表面ショアーA硬度(10秒後)

〔請求項6〕 JIS K 7015に規定する評価方法で得られた表皮層の光沢度が15～40である請求項4記載の自動車用外装部品。

〔請求項7〕 摺動子を5.0×5.0mmのガラス板、荷重を100g、摺動子の速度を1mm/minとする条件下で得られた表皮層の動的摩擦係数が0.30以下である請求項1～6のいずれか1項記載の自動車用外装部品。

〔発明の詳細な説明〕

40 [0001]

〔発明の属する技術分野〕 本発明は、オレフィン系熱可塑性エラストマーからなる表皮層を有するベルトモール、ウェザーストリップ、モジュラーウィンドモール、サイドモール、サイドモールバッキン、窓廻りモール、パンパーモールーフラッシュマウントモール、ルーフモール等の自動車用外装部品に関するものである。

[0002]

〔従来の技術〕 自動車用外装部品を構成する各部分を機能的に分類すると、①ガラス窓やボディーと共に自動車の外郭を構成する表皮層、②ガラス窓をスムーズに開閉

せたり、弾力により防水性や密閉性を発揮させる機能部分、③上記の表皮層や機能部分に固定される本体または芯材からなる。例えば、図1に例示したモジュラーウィンドモールは、ガラス窓を構成する高分子からなる表皮層1にガラスからなる本体2が固定されており、自動車においては、図6に例示したように、ボディー鋼板4に装着される。また、図2に例示したサイドモールは、鉄やポリアセタール(POM)からなる本体2が表皮層1に固定されており、自動車においては、図7に例示したように、ボディー鋼板4に装着される。

【0003】従来、自動車用外装部品を構成する高分子系素材としては、ハロゲンや芳香族原子団を含む熱可塑性高分子、あるいはリサイクルが不可能とされる架橋ゴムが使用されているが、一部の自動車用外装部品では、それらに代わる高分子系素材が求められてきた。そして、そのような高分子系素材として、シンプルな元素組成で構成されている熱可塑性エラストマーが脚光を浴びており、その普及が急がれている。熱可塑性エラストマーのうち、特に、オレフィン系熱可塑性エラストマーは、機械的特性や弾性的特性が架橋ゴムに近い物性を示し、しかも熱可塑性であるので、リサイクルが可能であるといった利点が評価されている。

【0004】このオレフィン系熱可塑性エラストマーは、ポリプロピレンなどの熱可塑性高分子中に、エチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体の架橋体が粒子(ドメイン)として分散された構造、いわゆる、海島構造を有する。そして、該ドメインは架橋ゴムの弾性的特性を呈し、バインダーとしての熱可塑性高分子中に分散されている。そのため、オレフィン系熱可塑性エラストマーは、流動性を有する弾性体マトリックス、つまり、熱可塑性エラストマーとしての特性を呈する。

【0005】このオレフィン系熱可塑性エラストマーを構成する熱可塑性高分子としては、ポリプロピレンが一般的であるが、低硬度且つ優れた物性を発揮させる目的で、ブロックタイプのポリプロピレンが広く使用されている。一方、オレフィン系熱可塑性エラストマーを構成するエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体は、 α -オレフィンとして、炭素数3から10程度の炭化水素の原子団が使用され、一般には炭素数3のプロピレンを使用したエチレン-プロピレン-ジエン共重合体(EPM)が代表的である。また、EPMの架橋点となるジエン成分としては、エチルノルボルネンが動的架橋に適していると評価されている。そのため、オレフィン系熱可塑性エラストマーを構成するエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体として、エチルノルボルネン系EPMの使用が一般的である。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】現行の自動車の外装モールには、ハロゲン系高分子組成物が使用されているが、これに代わる高分子系素材の条件として、機械的強

度が現行のハロゲン系高分子組成物に劣らないことが要求されている。このハロゲン系高分子組成物は、表面硬度と破断強度の間に相関関係があり、その近似式は、下記の式4に示すとおりである。自動車用外装部品の規格値は、この近似式に沿っている。したがって、オレフィン系熱可塑性エラストマーをハロゲン系高分子組成物の代替素材として使用するには、オレフィン系熱可塑性エラストマーの破断強度が、少なくとも式4の相関式から得られる破断強度よりも同等または大きいことが必要であるが、実際には、式4より得られる破断強度よりも小さく、式5から得られる近似値に留まっている。

$$\text{式4: } T_s = A \div 2 - 20 \quad (50 < A < 100)$$

$$\text{式5: } T_s = A \div 2 - 25 \quad (50 < A < 100)$$

T_s : JIS K 6251に規定する破断強度(測定温度は23±2°C)、単位はMPa

A: JIS K 6253に規定するショアA表面硬度(10秒後)

【0007】また、外装モールを構成する意匠部分は、自動車の外郭を構成することから、耐候性に優れることが要求されている。しかしながら、オレフィン系熱可塑性エラストマーは、現行のハロゲン系高分子組成物と比較して、耐候性に劣るという不具合がある。つまり、自動車用外装部品の素材として、シンプルな組成であるオレフィン系熱可塑性エラストマーが求められているのであるが、ハロゲン系高分子組成物と同等またはそれ以上の機械的物性をもち、しかも、この機械的物性を長期にわたり保持しうる耐久性および耐候性を有するオレフィン系熱可塑性エラストマーで構成された自動車用外装部品を提供することを目的とする。

【0008】本発明は、上記事情に鑑み、ハロゲン系高分子組成物と同等またはそれ以上の機械的物性をもち、しかも、この機械的物性を長期にわたり保持しうる耐久性および耐候性を有するオレフィン系熱可塑性エラストマーで構成された自動車用外装部品を提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】以下に、現行のオレフィン系熱可塑性エラストマーの機械的強度および耐候性が低い原因を個々に解説し、これらの物性を改善してなるオレフィン系熱可塑性エラストマーを使用した本発明について順次説明する。まず、現行のオレフィン系熱可塑性エラストマーの機械的強度が低い原因是、オレフィン系熱可塑性エラストマーを得るために、バーオキサイドを用いてエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体を架橋している点にある。一般に、オレフィン系熱可塑性エラストマーの破断強度や伸びなどの機械的物性は、バインダーとして機能する熱可塑性高分子の平均分子量に依存し、熱可塑性高分子の平均分子量が高い方が機械的物性に優れている。しかし、バーオキサイドを用いてエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体を架橋する場合、バーオキサイドの分解により発生する酸素などのラジカ

ルが、例えば、ポリプロピレン分子中のプロピレン部分や長鎖の分歧部分に存在する三級炭素を攻撃して、熱可塑性高分子鎖を切断する。そのため、熱可塑性高分子の平均分子量が低下してしまい、その結果として、破断強度や伸びなどの機械的物性が低下することになる。

【0010】かかるに、本発明者らは、ハロゲン系高分子組成物と同等またはそれ以上の機械的強度を得るために、ポリプロピレンなどの熱可塑性高分子を切断しない架橋方法で架橋し、その方法によって得たオレフィン系熱可塑性エラストマーを、自動車用外装部品の表皮層（意匠部分）における高分子系素材として採用すればよいと考え、そのような架橋方法から得られる高分子系素材の選定を行った。そして、鋭意研究の結果、本発明者らは、本発明に係る自動車用外装部品の高分子系素材として、ヒドロシリル化反応によって動的架橋したオレフィン系熱可塑性エラストマーを採用するに至った。このヒドロシリル化反応は、反応の第一段階として、触媒による水素原子の引抜きから開始されるので、極めて選択的な反応であり、また、ポリプロピレンなどの熱可塑性高分子を全く切断しないため、熱可塑性高分子の平均分子量は低下しない。したがって、表面硬度と破断強度の近似的相関関係は、ハロゲン系高分子組成物に匹敵するものが得られる。このヒドロシリル化反応による動的架橋は、オルガノハイドロジエンポリシロキサンを橋かけ剤として使用し、この橋かけ剤をエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体のジエンと付加反応させて架橋させる。そして、このヒドロシリル化反応によって得た熱可塑性エラストマーは、オレフィン系熱可塑性高分子中に、エチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体とオルガノハイドロジエンポリシロキサンとの架橋体が形成された構造を有する。

【0011】次に、現行のオレフィン系熱可塑性エラストマーの耐候性が低い原因についてであるが、これはエチレン-プロピレン-ジエン共重合体の架橋点であるジエンが、未反応のまま残る点にある。従来のオレフィン系熱可塑性エラストマーには、ジエン成分がエチルノルボルネンであるエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体が用いられてきたが、この共重合体は架橋しても4~7割のジエンが不安定な不飽和部分として残留している。そして、湿潤環境や紫外線下などに暴露されたり、長期の熱履歴によって、残留ジエンが変質し、その結果、オレフィン系熱可塑性エラストマーが変色したり、破断強度などの機械的物性が低下する。その対策方法として、本発明者らは、反応性に富んだジエン成分をもつエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体からなるオレフィン系熱可塑性エラストマーを選択すればよいと考えた。そして、架橋点であるジエンの二重結合が、分子構造的に立体障害を受けにくい部分にあれば、反応性に富むことになる。そのようなジエン成分としては、ビニルノルボルネンが最も良く該当することから、本発明

では、ジエン成分として、ビニルノルボルネンを選択した。

【0012】このビニルノルボルネンは、汎用のエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体に使用されているエチルノルボルネンと比較して、格段に高い架橋効率を呈する。例えば、4.5wt%のビニルノルボルネンを含有するエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体と、同量のエチルノルボルネンを含有するエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体を比較すると、同じ条件で行ったバーオキサイド架橋での有効網目密度は、前者が 17×10^9 個/ cm^3 であるのに対して、後者は 8×10^9 個/ cm^3 であり、前者の方が圧倒的な架橋効率の高さを示す。なお、両者ともジエンの数は 23×10^9 個/ cm^3 であるから、エチルノルボルネンは6割以上の残留ジエンがあるのに対して、ビニルノルボルネンは3割に満たない。ヒドロシリル化反応で架橋を行った場合は、有効網目密度は、前者が 21×10^9 個/ cm^3 （残留ジエンは1割未満）であるのに対して、後者は 10×10^9 個/ cm^3 （残留ジエンは5割程度）となり、その差がさらに開く。

【0013】すなわち、本発明は、JIS K 6253に規定するショナーA硬度が50~100の範囲にあるオレフィン系熱可塑性エラストマーからなる表皮層が設けられており、上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、熱可塑性高分子を主成分とするハードセグメントと、エチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体とオルガノハイドロジエンポリシロキサンの架橋体からなるソフトセグメントで構成されており、上記エチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体は、ジエン成分としてビニルノルボルネンを必須とし、上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、熱可塑性高分子1~1,000重量部、エチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体100重量部、オルガノハイドロジエンポリシロキサン0.1~15重量部からなることを特徴とする自動車用外装部品である。

【0014】しかしながら、ビニルノルボルネンをジエン成分とするエチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体を用いて、動的架橋してオレフィン系熱可塑性エラストマーを得る際、海島構造を構成するドメイン（架橋体）を形成した後も反応し続け、このドメイン同士が反応の進行に伴って結合し、巨大化してしまい、オレフィン系熱可塑性エラストマーの外観や物性を損ねるといった不具合がある。その対策方法として、①エチレン- α -オレフィン-ジエン共重合体にビニルノルボルネン以外のジエンを補足して反応速度を制御する方法、②請求項3記載の(a-1)、(a-2)、(a-3)に示すジエン化合物を補足してドメインの形成と同時に反応を終了させる方法、③請求項4記載の(b-1)、(b-2)、(b-3)、(b-4)に示す共重合体または高分子系組成物を補足してドメイン同士を孤立させて結合を阻害する方法を探るのが好適である。したがって、本発明の自動車用外装部品は、好適な態様として、上記①の方法

により得たオレフィン系熱可塑性エラストマーを選択してなる発明(請求項2)、上記②の方法により得たオレフィン系熱可塑性エラストマーを選択してなる発明(請求項3)、上記③の方法により得たオレフィン系熱可塑性エラストマーを選択してなる発明(請求項4)の形をとる。そして、これらは請求項5記載の式数3に示す機械的強度を呈し、これはハロゲン系高分子組成物に匹敵する。

【0015】前項にて、従来のオレフィン系熱可塑性エラストマーが機械的強度および耐候性に劣る原因を指摘したが、これらの他に、従来のオレフィン系熱可塑性エラストマーには、艶が発現しない、キズがつき易い、といった欠点があった。しかし、本発明で使用するオレフィン系熱可塑性エラストマーは、以下に述べるように、これらの欠点をも改善することができる。まず、前者の艶の発現については、請求項4記載の共重合体または高分子系組成物を配合すると、艶が発現しないという不具合を改善することができる。そして、請求項6に述べるように、光沢度(グロス)が25以上の艶を発現して、自動車のボディーの光沢と同調させることができるとなる。

【0016】後者のキズつき性については、公知の改善方法として、摺動性を付与させる方法があるが、本発明で使用するオレフィン系熱可塑性エラストマーは、ハロゲン系高分子組成物に匹敵するほど優れた物性があるので、動的摩擦係数が0.30以下の摺動性を持たせれば、キズつき性を格段に改善させることができる。したがって、請求項7に係る本発明の自動車用外装部品を自動車に搭載することにより、耐久的価値を向上させることができる。

【0017】

【発明の実施の形態】本発明の自動車外装用部品は、オレフィン系熱可塑性エラストマーにより構成され、これはハードセグメントである熱可塑性高分子中に、ソフトセグメントであるエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体とオルガノハイドロジエンポリシロキサンとの架橋体が形成されてなる構造を有する。以下に、上記オレフィン系熱可塑性エラストマーを構成する熱可塑性高分子、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体、オルガノハイドロジエンポリシロキサンなど、個々の材料について詳細に述べる。

【0018】まず、上記オレフィン系熱可塑性エラストマーを構成する熱可塑性高分子について説明をする。該熱可塑性高分子は、オレフィン系高分子の中から選択される。ここで、オレフィン系高分子とは、ハロゲン、窒素、燐などの元素や芳香族系原子団を含まない炭化水素系高分子を意味する。すなわち、熱可塑性高分子としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体(ブロック共重合体、ランダム共重合体)、エチレン-プロピレン- α オレフィン共重合体(ブロック共重合体、ランダム共重合体および、いわゆるポリブ

ロビレン系リアクター-オレフィン系熱可塑性エラストマー)、エチレン- α オレフィン共重合体(いわゆるL-LDPE、または軟質オレフィン)、プロピレン- α オレフィン共重合体(ブロック共重合体、ランダム共重合体および、いわゆるポリプロピレン系リアクター-オレフィン系熱可塑性エラストマー)、エチレン-ポリプロピレン系エラストマー/エチレン-プロピレン/ポリエチレン(いわゆるブロックポリプロピレンの一種)、エチレン-アクリル共重合体(いわゆるEAAなど)、エチレン-ビニルアルコール共重合体(いわゆるEVOH)、上記以外のプロピレンを含む共重合体、上記以外の α オレフィンを含む共重合体、上記以外の環状オレフィンを含む共重合体、 α オレフィン重合体、環状オレフィン重合体、上記以外のエチレンを含む共重合体、上記のマレイン酸変性物、上記の水酸基付加物、および上記のシラン変性物などから選択される高分子が挙げられる。これらのうち、本発明では、プロピレンを主成分とする熱可塑性高分子が、オレフィン系熱可塑性エラストマーの諸物性について信頼性が得られるので好ましい。なお、上記熱可塑性高分子は、幾種類かの混合物であってもよい。

【0019】次に、オレフィン系熱可塑性エラストマーを構成するエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体について説明をする。該共重合体の構成成分である α オレフィンについては、炭素数3のプロピレンが一般的であり、本発明においても、プロピレンを使用するのが好ましい。

【0020】エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体におけるエチレンの構成比については特に限定ではなく、10~40%程度の低エチレンタイプであったり、50~70%の高エチレンタイプであってもよいが、より優れた物性を得ることを考慮すると、後者の高エチレンタイプが望ましい。エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体における α オレフィンの構成比については普通30~70%の範囲であるが、特に限定ではなく任意である。エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体におけるジエン成分の構成比は、普通1~8%の範囲であるが、特に限定ではなく任意である。

【0021】エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体は、ジエン成分として、ビニルノルボルネンを必須とする。既に述べたように、ビニルノルボルネンは架橋効率が高いという利点がある反面、反応が速すぎるので、オレフィン系熱可塑性エラストマーの生産に難がある。そこで、その対策として、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体のジエン成分として、ビニルノルボルネン以外のジエンを補足することができる(請求項2)。

【0022】つまり、請求項2に係る本発明は、ジエン成分が、ビニルノルボルネンを必須とする多元成分からなるエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体を用いたものである。そして、ビニルノルボルネン以外のジエン成分としては、ビニルノルボルネン以外の非共役二重結

合を有する原子団が選択される。この非共役二重結合を有する原子団としては、ジシクロノルボルネンまたはエチルノルボルネンが代表として挙げられる。エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体におけるジエン総重量のうち、ビニルノルボルネンが0.50以下のモール分率では反応効率による効果が少なく、0.95以上のモール分率では反応制御の効果が弱くなるので、本発明に使用するエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体は、ジエン成分の総量のうち、ビニルノルボルネンのモール分率が0.50～0.95の範囲が望ましく、より望ましくは0.70～0.90の範囲であり、さらに望ましくは0.75～0.90の範囲である。したがって、ジエン成分の総量をX mol当量、ビニルノルボルネンの総量をY mol当量、ビニルノルボルネン以外の非共役二重結合を有する原子団の総量をZ mol当量とした場合に、X、Y、Zが数式1：Z ≤ Y ≤ 19 Z、数式2：Z + Y = X}を満たすことが望ましい。

【0023】また、本発明において、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体は、上記の数式1および2の関係を満たすようにして、2種類以上からなる混合物としてもよい。例えば、ジエン成分の含量が5.0重量%であるビニルノルボルネン系のエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、同量のジエン成分の含量であるエチルノルボルネン系のエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体またはジシクロベントジエン系のエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体を10～1,900重量部混合したり、ジエン成分の含量が5.0重量%のビニルノルボルネン系のエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、ジエン成分の含量が0.5～19.0重量%（ただし、普通1～8重量%まで）のエチルノルボルネン系のエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体またはジシクロベントジエン系のエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体を混合することができ、また、任意に混合比を選択することができる。なお、請求項3で述べる(a-1)、(a-2)、(a-3)に示すジエン化合物を配合する方法と、請求項4で述べる上記ジエン化合物と(b-1)、(b-2)、(b-3)、(b-4)から選択される共重合体または高分子系組成物との併用によって、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体の反応性に起因して、ドメイン同士が結合して巨大化する不具合を解消する方法においては、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体は、そのジエン成分が、ビニルノルボルネンのみから構成されるものに限定される。

【0024】エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体の分子の目安として、ムーニー粘度（例えば、ML_{1,120°C}）が一般に用いられるが、これについても本発明においては限定がない。なお、50以上の高ムーニータイプであれば優れた物性が期待でき、75～120であればさらによい。この粘度範囲は、本発明における全ての請求項に係るエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体に適用さ

れる。エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体は、その分岐や分子量分布などの特性には限定がなく、また、パラフィンオイルの添加により流動性について改質してあったり、他の高分子やフィラーなどによって補強されていてもよい。

【0025】本発明において、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体のジエン成分として、ビニルノルボルネンのほかに、エチルノルボルネンやジシクロベントジエンを使用することもできるが、残留ジエンが3割を超えると、オレフィン系熱可塑性エラストマーの物性の耐久性に悪影響があるので、該エラストマー生産時の動的架橋の段階で3割未満、望ましくは1割以下になるよう反応させる必要がある。水分や熱などでオルガノハイドロジェンポリシロキサンと触媒を失効させない限り、ジエン成分としては、ビニルノルボルネンが、オレフィン系熱可塑性エラストマーの物性の耐久性において優位性がある。また、ジエン成分をビニルノルボルネンに限定すれば、上記エラストマー生産時の動的架橋の段階で残留ジエンを3割以下にすることができる、オルガノハイドロジェンポリシロキサンと触媒の失効を心配する必要がない。

【0026】本発明の自動車用外装部品の表皮層を構成するオレフィン系熱可塑性エラストマーにおいて、熱可塑性高分子とエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体との構成比については、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、熱可塑性高分子が1重量部未満では、オレフィン系熱可塑性エラストマーの物性が悪くなったり、流動性を呈さなかったりすることがあり、1,000重量部を超えるとオレフィン系熱可塑性エラストマーの軟質的特性が失われるので、1～1,000重量部が好ましく、特に7～500重量部が好ましい。

【0027】エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体を動的架橋するオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、珪素原子に直接結合した水素原子が主鎖または末端に2個以上あるものや、環状のもの、主鎖に脂肪族や芳香族からなる部分をもつもの、そして、これらのシロキサン主鎖の長さや分岐の形態によって様々なものがあるが、珪素原子に直接結合した水素原子が主鎖または末端に2個以上あれば、本発明において限定はなく任意である。また、幾種類かのオルガノハイドロジェンポリシロキサンを併用してもよい。このオルガノハイドロジェンポリシロキサンの使用量は、0.1重量部以下では動的架橋が不充分となり、15重量部以上では過剰であるので、本発明においては、0.1～15重量部とするのが好ましく、特に1～8重量部が好ましい。

【0028】オレフィン系熱可塑性エラストマーの作製には、塩化白金酸などのヒドロシリル化触媒を要する。ヒドロシリル化触媒としては、白金族元素、ロジウム、チタン又は錫を核とするキレート化合物が挙げられる。特に、工業的には、塩化白金酸、塩化白金酸6水和

11

物などの白金塩化物や、ビニル基を含有するシロキサンまたはポリシロキサンを配位した白金キレート物、非共役二重結合炭化水素化合物の白金キレート物が使用されているが、本発明においては、ヒドロシリル化触媒の種類についての限定は特になく、また、2種類以上の使用であってもよい。ヒドロシリル化触媒の使用量は、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体に対して金属原子の重量が0.005ppm未満では架橋が不充分で、上限は特にないが過剰ではコストに影響するので、0.005~30ppmの範囲が適量であり、望ましくは、0.01~25ppmである。

【0029】本発明は、請求項3に示すように、ジエン成分をビニルノルボルネンに限定したエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体の動的架橋において、ドメイン同士が結合してゲルが生成するのを抑制するために、(a-1)、(a-2)、(a-3)から選択される少なくとも1つのジエン化合物を添加することができる。(a-1)成分は、アクリロイル基を1分子中に少なくとも5個もち、化1の構造単位を有しない化合物である。アクリロイル基が5個未満であると、後記する(a-2)、

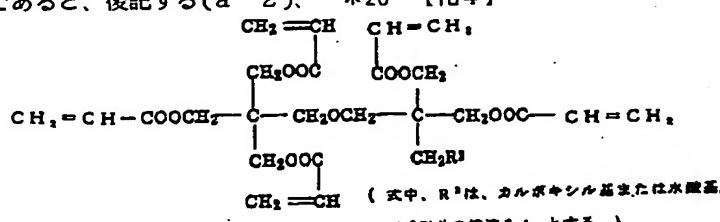
10

* (a-3)成分を除けば、架橋粒子（ゲル）の生成防止効果はない。アクリロイル基の数は、10~50個が好ましく、さらに好ましくは10~30個である。50個よりも多いと(a-1)成分自体の硬化物粒子が生成する場合がある。また、オレフィン系熱可塑性エラストマーの柔軟性を低下させる場合もある。(a-1)成分の分子量は300~10,000、好ましくは400~5,000の範囲である。この範囲であると、オレフィン系熱可塑性エラストマー組成物の製造上扱いやすい。(a-1)成分の添加量は、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、0.05~50重量部が好ましく、さらに好ましくは、0.3~15重量部である。この範囲にあると架橋粒子（ゲル）の生成防止に優れ、しかも経済的である。

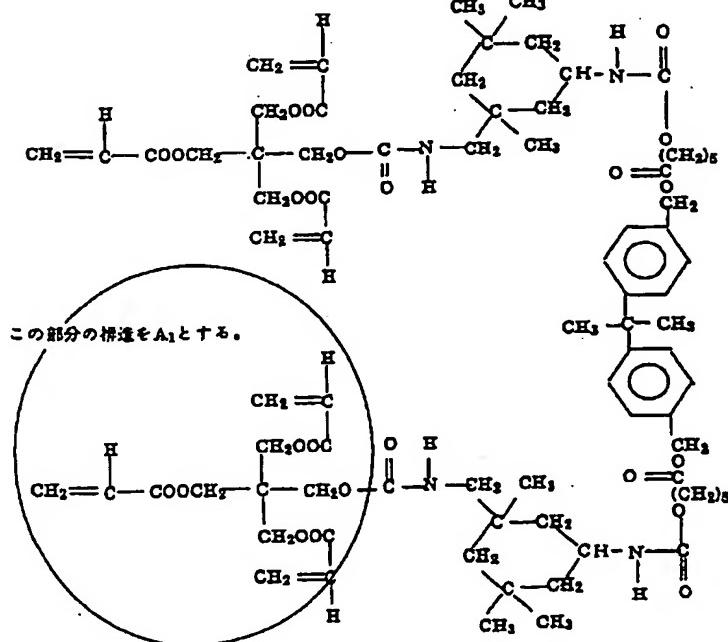
【0030】(a-1)成分としては、アクリロイル基を1分子中に少なくとも5個有するアクリル酸、アルコール、ポリオールアクリレート、ポリエステルアクリレート、ウレタンアクリレート、アクリルポリマーが挙げられ、具体的には、化4~化9が例示できる。

【0031】

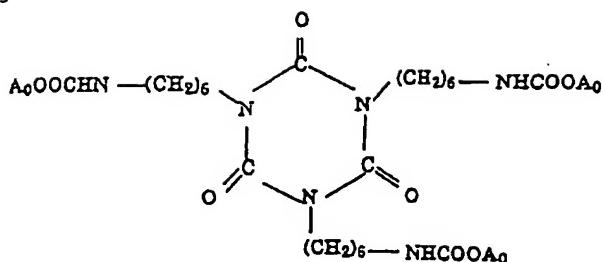
【化4】



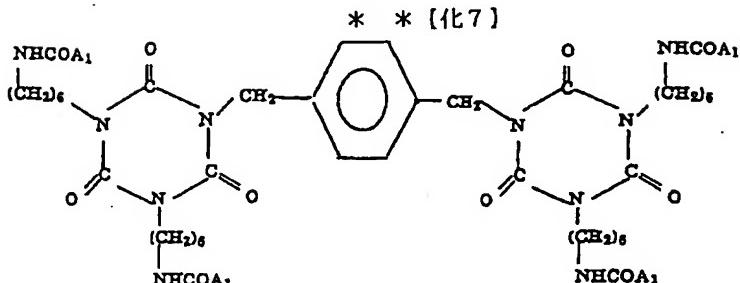
【0032】



50 【化6】



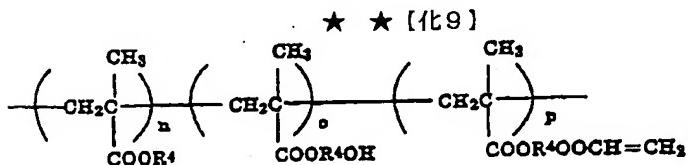
【0034】



【0035】



【0036】

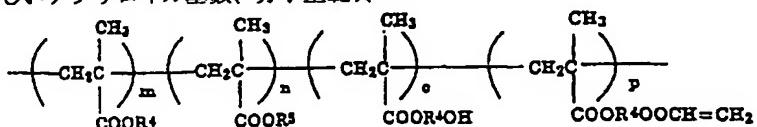
(式中、 R^4 は、同一あるいは異種の $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ のアルキル基を示し、 $n=50\sim90$ 、 $\circ=0\sim20$ 、 $p=5\sim30$)

【0037】化2、化3の構造単位を有するものも、アクリロイル基5個以上という条件下で、(a-1)成分に含まれ、好ましい化合物である。化10～化12が例示される。なお、化1の構造単位を有するものも、アクリロイル基5個以上という条件下で、架橋粒子の生成防止に効果があるが、好ましいアクリロイル基数、分子量範☆

☆団、添加量範囲が格段に広く、また、摺動性、耐キズつき性、耐寒性に優れるなどの付加特性があるため、(a-1)成分には含めていない。

【0038】

【化10】



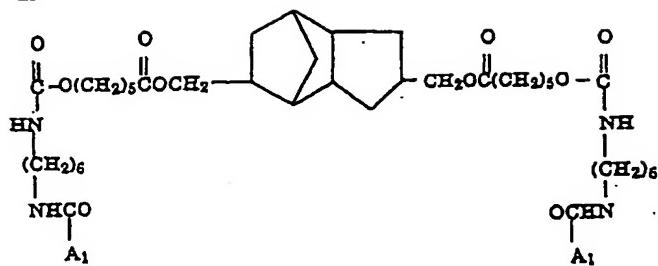
(式中、 R^4 は、同一あるいは異種の $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ のアルキル基を示し、 R' は、同一あるいは異種の $\text{C}_{11}\sim\text{C}_{14}$ のアルキル基を示し、 $m=0\sim20$ 、 $n=30\sim90$ 、 $\circ=0\sim20$ 、 $p=5\sim20$)

【0039】

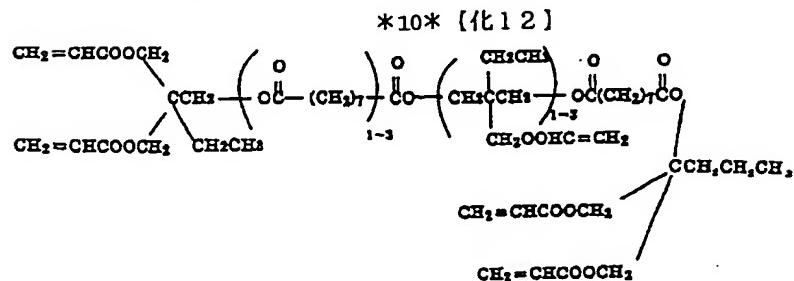
【化11】

15

16



[0040]



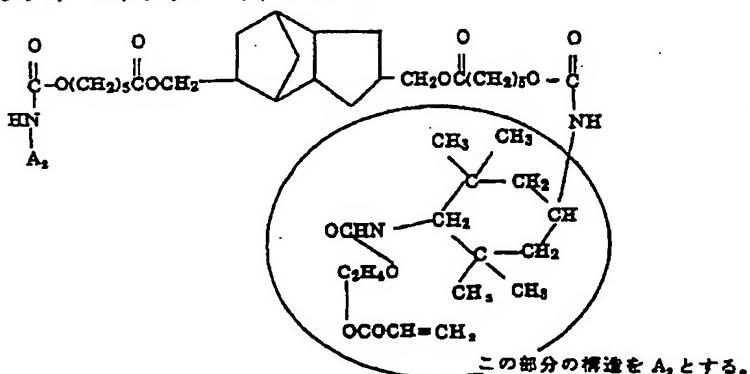
[0041] (a-2) 成分は、分子中に2~5個のアクリロイル基をもち、化2または化3の構造単位を有するもので、アクリロイル基の数が1分子中に2~5個と少なくても、構造形成効果があることが特徴である。

(a-2)成分としては、1, 9-ノナンジオールアクリレート、1, 8-ノナンジオールアクリレート、トリシ※

※クロデカンジメタノールジアクリレート、2-エチル-2-プロピル-2-プロパンジオールアクリレート、化13~化21等が挙げられる。

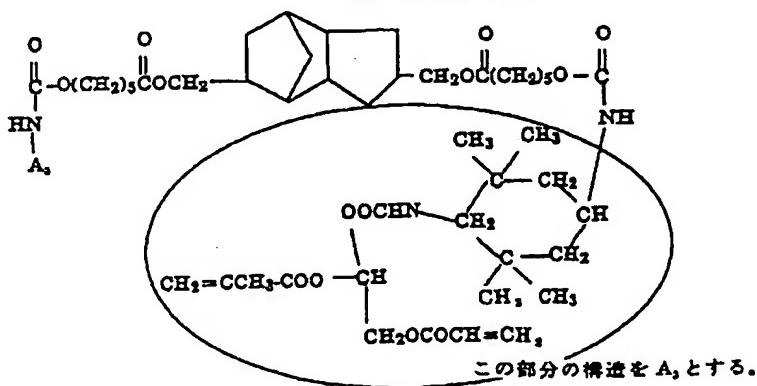
[0042]

[化13]



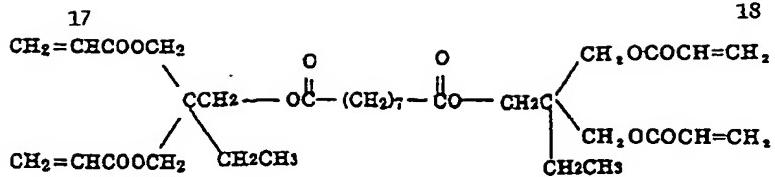
[0043]

★ ★ [化14]

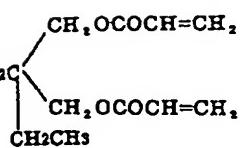


[0044]

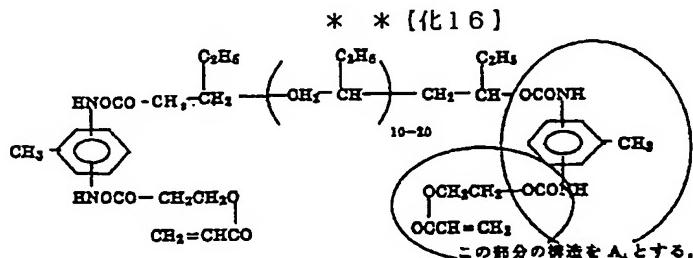
50 [化15]



18

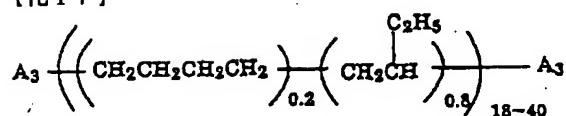


[0045]

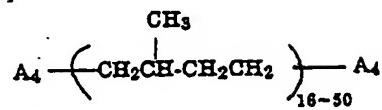


[0046]

[化17]

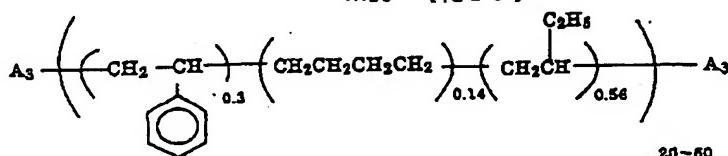


※ [化18]



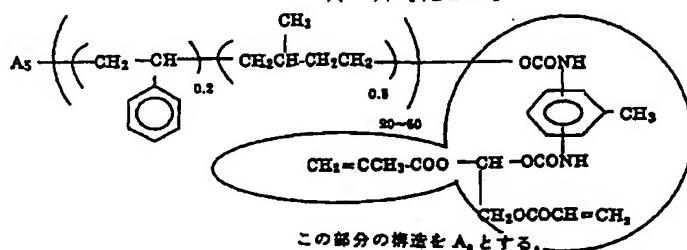
[0047]

※20 [化19]



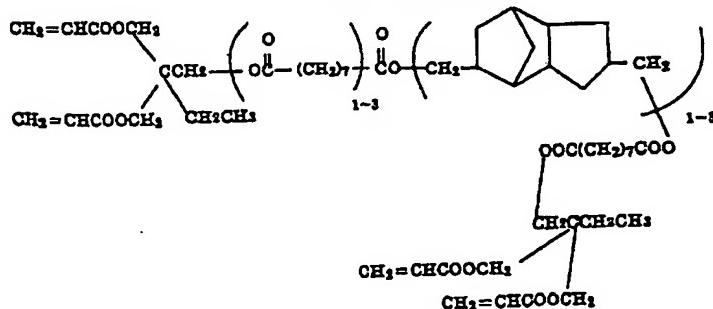
[0049]

★ ★ [化20]



[0050]

★ ★ [化21]



[0051] (a-2) 成分の分子量は200~10,000の範囲で、好ましくは235~5,000である。10,000を超えると架橋粒子(ゲル)の生成防止効果が乏しくなり、200未満ではアクリロイル基、化2、化3で化合物を構成でき

ない。(a-2) 成分の添加量は、エチレン-αオレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、0.05~50重量部が好ましく、さらに好ましくは0.3~20重量部である。0.05重量部より少ないと構造形成に効果がなく、50

19

重量部を超える量は経済的に不利である。(a-2)成分は、ビニルノボルネンからなるエチレン- α オレフィン非共役ジエン共重合体ゴムとの相溶性が良好である。

【0052】(a-1)、(a-2)成分は、アクリロイル基のヒドロシリル化剤と、高速反応性を利用したエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体の短時間での高効率架橋(作用①)により形成されたドメイン同士を結合させることなく、反応が完結してしまうことで、ゲルの形成を抑制すると推定される。中でも(a-2)成分におけるアクリロイル基以外の部分の構造である化2、化3は何らかの優位性をもたらし、アクリロイル基の数への依存が少なくて高速反応性を発現させるものと推定される。化2、化3の優位性としては、ビニルノボルネンからなるエチレン- α オレフィン-非共役ジエン共重合体ゴムとの相溶性の良さが挙げられる。

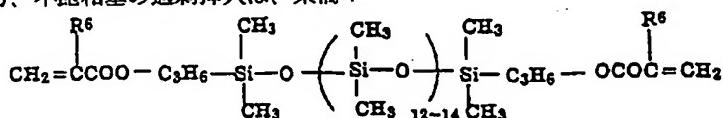
【0053】(a-3)成分の架橋粒子(ゲル)生成防止剤は、化1の構造単位を有するもので、アクリロイル基、メタクリロイル基、ビニル基、プロペニル基、2-ブテン基、アリル基から選択される不飽和基のいずれかを1分子中に2個以上もつものである。不飽和基はアクリロイル基、ビニル基、アリル基が好ましい。不飽和基は1分子中に2個以上必要であり、好ましくは2~5,000個、さらに好ましくは2~2,000個である。不飽和基が2個未満であると架橋粒子の生成防止効果がなく、機械的強度の低下や熱可塑性エラストマーにべたつき感を与えることもある。一方、不飽和基の過剰挿入は、架橋*

20

*剤の増量を促すことになる。化1中、R'は、同一あるいは異種のC1~C3アルキル基、フェニル基、キシリル基を示し、aは1≤a≤2.4を満たす数である。このオルガノポリシロキサンは直鎖状であっても、R'SiO_aやR'SiO_a単位を含んだ分岐状であってよい。R'としては、汎用性の高いメチル基、フェニル基が望ましい。(a-3)成分の分子量は500~1,000,000の範囲で、好ましくは1,000~700,000である。1,000,000を超えると(A)、(B)成分との均一分散が難しくなる場合がある。(a-3)成分の添加量は、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、0.05~600重量部、好ましくは、0.5~400重量部、さらに好ましくは、1~400重量部である。0.05重量部未満では架橋粒子(ゲル)の生成防止効果に乏しく、600重量部を超えると機械的強度が低下し、フェニル基と不飽和基の含有率が高い(a-3)成分では柔軟性が低下する。(a-3)成分は、ヒドロシリル化剤や有機過酸化物と高速反応性を示すアクリロイル基だけでなく、多くの不飽和基でその効果が認められることから、作用①に加えて、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体の架橋体の分断分散作用(作用②)を併せ持つものと推定される。(a-3)成分の具体例としては、化22~化33が例示される。

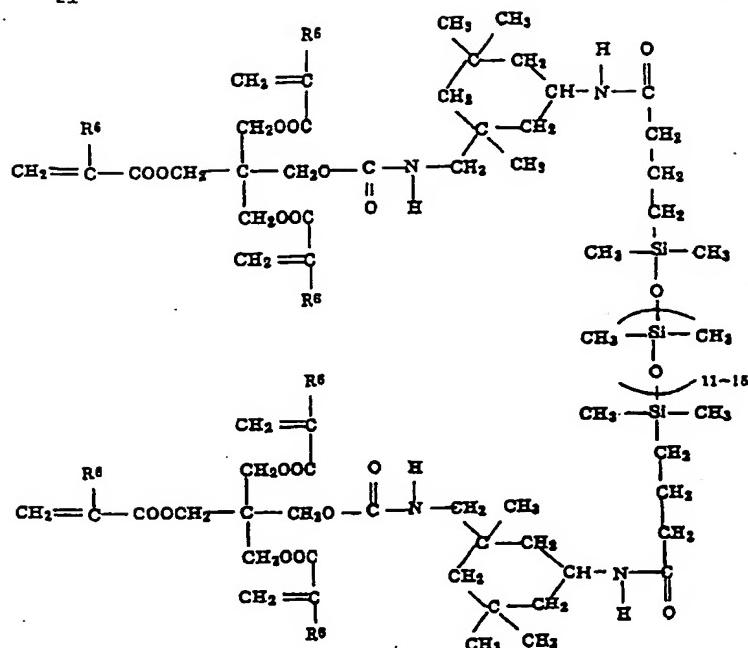
【0054】

【化22】

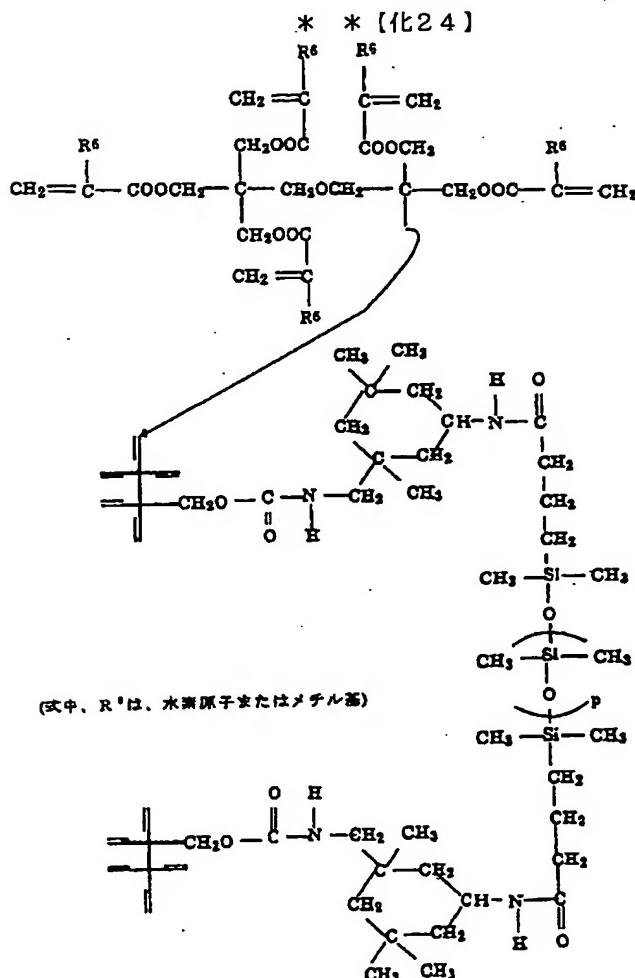
(式中、R⁶は、水素原子またはメチル基)

【0055】

【化23】



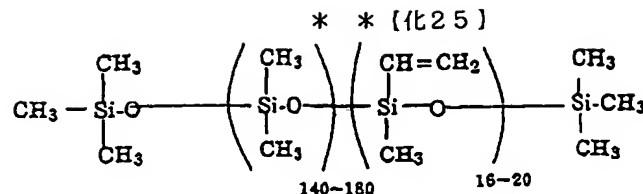
【0056】



(13)

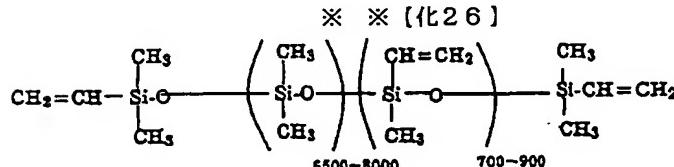
23

[0057]



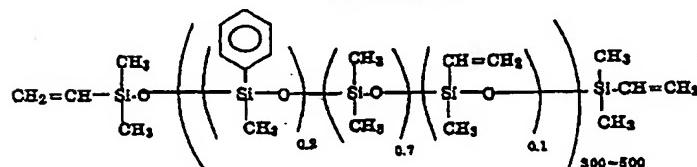
24

[0058]



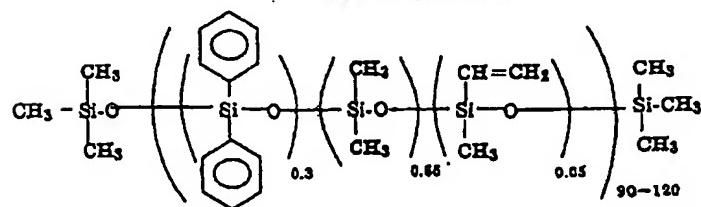
[0059]

★ ★ 【化27】



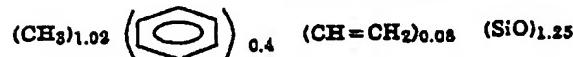
[0060]

☆ ☆ 【化28】



[0061]

◆ ◆ 【化29】

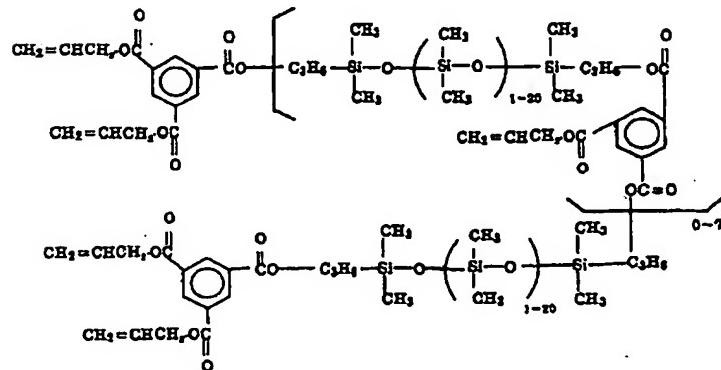


(上記は平均組成式、分岐を有するシリコーンレジンと称するもの。

分子量 900-1500

[0062]

* * 【化30】

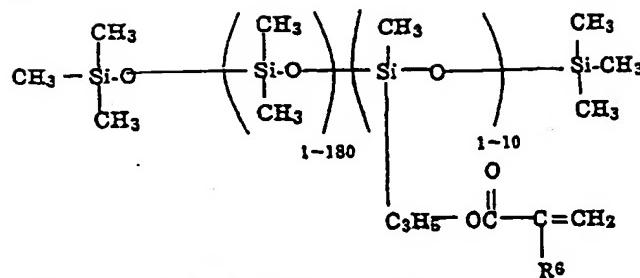


[0063]

【化31】

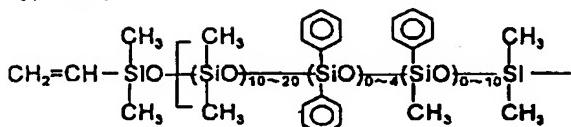
25

26

(式中、R⁶は、水素原子またはメチル基)

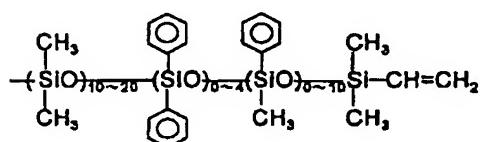
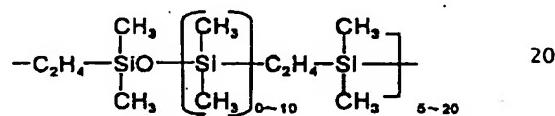
〔0064〕

〔化32〕

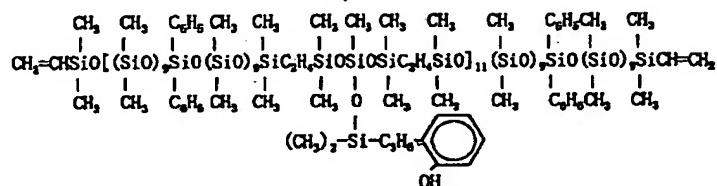


* 〔0065〕

〔化33〕



*



〔0066〕上記(a-1)、(a-2)、(a-3)の各成分は、同一成分内の複数併用や、これら成分間の併用も可能である。同一成分内の併用であれば、その合計が各成分の好ましい添加量となるようにすることが好ましい。成分間における併用の場合、(a-1)、(a-2)を併用する場合は、それらの合計が、エチレン- α オレフィン共重合体100重量部に対して、0.05~50重量部になるように調整することが好ましい。(a-3)を含む組合せの場合は、(a-1)と(a-2)の合計が50重量部を超えず、(a-1)、(a-2)、(a-3)の合計が0.05~600重量部、好ましくは、0.5~450重量部、さらに好ましくは1~400重量部となるように調整する。

〔0067〕本発明で使用するオレフィン系熱可塑性エラストマーには、上記(a-1)、(a-2)、(a-

3)の成分に加えて、(b-1)、(b-2)、(b-3)、(b-4)の成分から選択される少なくとも1つの高分子を添加することが好ましい。上記の高分子を添加することによって、架橋粒子(ゲル)生成防止は、阻

40 害されることではなく、さらに、機械的強度の向上、ゴム弾性、耐寒性に優れる製品を得ることができる。また、光沢付与、成形性向上(異形押出性、高速押出性、高流动性など)といった効果が発現する。

〔0068〕(b-1)成分は、密度が0.85~0.91g/cm³のエチレン- α オレフィン共重合体であり、エチレンと、少なくとも1種類のC3~C8が好適である。

(b-1)成分としては、1)分子量分布Mw/Mnが約2の均一線状エチレンコポリマー：三井化学社製「TA FMERP」(商品名)、Exxon Chemical Company社製「Exact」(商品名)、2)不均一線状エチレンコポリマー：

50

住友化学社製「Excellen VL」（商品名）、東ソー社製「LUMITAC」（商品名）、「Dow Chemical Company社製「Attane」（商品名）、3) 長鎖分岐を有する実質的に線状であるエチレンコポリマー：Dow Chemical Company社製エチレン1-オクテンコポリマーPOE「Engage EG」（商品名）、Dow Chemical Company社製POP「AFFINITY」（商品名）、4) ランダム（無定形ゴム様）性の強いエチレンコポリマー：エチレン-プロピレンコポリマー、エチレン-ブテン-1コポリマーが例示される。また、4) のランダム性の強いエチレンコポリマーを50重量%以上の含有量でプロピレンに分散させた組成物を用いてもよい。具体的には、Montell-JP社製「Catalloy」（商品名）、「Montell-JP社製[Adsy]」（商品名）、トクヤマ社製「P. E. R」（商品名）などのリアクターメイドのオレフィン系熱可塑性エラストマーが好適である。その他、5) リビングアニオン重合した製品であるJSR社製CEBC「DYNARON6200P」（商品名）がある。

【0069】(b-2) 成分の非結晶性プロピレン- α オレフィン共重合体は、プロピレン中におけるアタクチック比が5重量%を超えるFPOで30~45重量%が好ましい。例えば、これに2~15重量%のエチレンを共重合したHuntsman Corporation社製「REXflex」（商品名）がある。

【0070】(b-3) 成分の水素スチレン系ランダム共重合体は、ランダムなスチレン-共役ジエン共重合体に水素添加したものである。スチレン-ブタジエン共重合体水素添加物JSR社製HSBR「DYNARON1320P」（商品名）、「DYNARON1321P」（商品名）、スチレン-イソブレン共重合体水素添加物が例示される。

【0071】(b-4) 成分の水素添加スチレン系ブロック共重合体は、スチレン系重合体ブロックと、共役ジエン重合体ブロックからなる共重合体に水素添加したものである。共役ジエンとしては、ブタジエン、イソブレン、1、3-ベンタジエン、2、3-ジメチル-3、4-ブタジエン等が例示される。水素添加スチレン系ブロック共重合体として、旭化成社製SEBS「タフテック」（商品名）、旭化成社製SBBS「タフテックPシリーズ」（商品名）、Shell-JP社製SEBS「クレイトン」（商品名）、クラレ社製SEPS「セプトン」（商品名）、JSR社製SEBC「DYNARON4600P」（商品名）が例示される。

【0072】上記(b-1)、(b-2)、(b-3)、(b-4)の各成分は、単独または併用して用いる。(b-1)、(b-2)、(b-3)、(b-4)の各成分は、動的架橋の際に、構造形成を促進させてゲルの生成を抑制するが、この働きはエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、1重量部以上の配合量で効果を呈する。また、自動車用外装部品のうち、フラッシュマウントモールやルーフモールなど

は、光沢をもった意匠が望まれているが、30重量部以上配合すると、ドメインを含有する高分子組成物としての流動特性が改善されて、押出成形をしても、請求項6述べるように、光沢度が15~40の範囲にまで発現する（従来のオレフィン系熱可塑性エラストマーは光沢度が10以下）。ただし、500重量部を超えると、ソフトセグメントであるエチレン- α オレフィン-ジエン共重合体の架橋体の絶対量が少なくなるので、オレフィン系熱可塑性エラストマーとしての意義が薄くなるし、ものによっては成形性が悪化してしまう。したって、本発明において、(b-1)、(b-2)、(b-3)、(b-4)の各成分の添加量は、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して、1~500重量部が好ましく、特に50~300重量部の範囲が好ましい。

【0073】また、自動車用外装部品のうち、ウェザーストリップなどの部品は、摺動性を有することが望まれているが、本発明の請求項7では、①シリコーン系優れた物性、シリコーン変性された熱可塑性高分子、シリコーン変性されたエラストマーなどの摺動性物質を配合することで素材そのものに摺動性を付与する方法、②熱可塑性高分子やゴムの粉碎物や高分子の球状重合物等の粒子を配合して表面を荒らすことによって、自動車用外装部品表面における接触面積を減少させる方法、をとることによって、0.3以下の動的摩擦係数を発現させていく。なお、動的摩擦係数の測定は、摺動子を5.0×5.0mmのガラス板、荷重を100g、摺動子の速度を1m/minとする条件下で行う。

【0074】本発明において、上記摺動性物質や粒子の添加量について限定はないが、上記①の配合処方の場合、摺動性物質の添加量は、オレフィン系熱可塑性エラストマー100重量部に対して0.1重量部以下では摺動性を発揮することはできず、シリコーン系オリゴマーは10重量部では過剰、シリコーン変性された熱可塑性高分子やシリコーン変性されたエラストマーは100重量部では過剰であるので、シリコーン系オリゴマーは0.1~10重量部、シリコーン変性された熱可塑性高分子やシリコーン変性されたエラストマーは0.1~100重量部が適当である。上記②の配合処方の場合、粒子の添加量は、オレフィン系熱可塑性エラストマー100重量部に対して1.0重量部以下では摺動性を発揮することはできず、300重量部を上回ると粒子の保持が困難になるので、1.0~300重量部が適当である。また、粒子の平均粒径についても特に限定はないが、5μm以下では熱可塑性エラストマーから突出しないので部品表面における接触面積を減少させることができず、3,000μm以上では粒子の保持が困難になるので、5~3,000μmの範囲が適当である。

【0075】また、本発明で使用するオレフィン系熱可塑性エラストマーには、バラフィン系オリゴマーを含有させてもよく、これにより柔軟性を付与することができる。また、該オリゴマーは成形時にオレフィン系熱可塑

性エラストマーの全体に行き渡り、オレフィン系熱可塑性エラストマー自身の粘度を下げるといった二次的働きをも呈する。本発明においては、該オリゴマーを配合するタイミングを限定しないが、第一工程で行うのが望ましい。また、近年、プロセス段階に該オリゴマーを配合してなる、いわゆる油展エラストマーが市販化されているが、これを用いてもよい。該オリゴマーは、不純物の残留量や平均分子量によってグレードが分かれているが、本発明においては限定がない。また、該オリゴマーの添加量は、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体100重量部に対して150重量部を上回るとブリードし、少なくとも5重量部でないと効果があまり現れないで、5~150重量部、特には、10~120重量部が望ましいが、限定されるものではない。

【0076】本発明で用いるオレフィン系熱可塑性エラストマーには、下記に挙げる改質効果を呈する材料を配合しても良く、それらの材料は、自動車用外装部品に成形する前に添加してもよい。本発明で用いるオレフィン系熱可塑性エラストマーにおいて、流動性を改善したり、機械的物性や硬度の調整、また、金属や異種の高分子などとの接着性を付与するために、オレフィン系熱可塑性エラストマーを構成しているオレフィン系高分子に対して他の高分子を補足することができる。該高分子は、オレフィン系高分子に限定したものではなく、モノマー、オリゴマーまたは無機物であってもよい。例えば、マレイン酸変性物や水酸基付加物を添加すれば、金属や異種のプラスチックなどとの接着性を付与することができ、シラン変性物を添加すれば、摺動性を付与することができる。また、オレフィン系熱可塑性エラストマーにパラフィン系オリゴマーを含有させてもよく、これにより柔軟性を付与することができ、該オリゴマーは成形時に高分子組成物の全体に行き渡り、該組成物自身の粘度を下げるといった二次的働きをも呈する。さらに、用途に合わせて、摺動性、顔料や意匠効果を呈する粉末、または物性を補足するための高分子、フィラーおよびオリゴマー、耐久性を補足するための各種安定剤などを添加することもできる。本発明で用いるオレフィン系熱可塑性エラストマーは、JIS K 6253に規定するショアA硬度が50~100の範囲にあることを要する。その理由は、50未満では素材的に不可能な硬度であり、100を超えると外力が加わってもその応力を分散するといったエラスチックな特長が発現しなくなるためである。

【0077】本発明の自動車用外装部品の表皮層を構成する上記熱可塑性エラストマーは、下記に述べる製造段階を経て作製される。その製造段階は、第一工程として、材料の調製として混合物を得るプロセス、第二工程として混合物を動的架橋するプロセス、とから構成される。以下に各工程の詳細を述べる。第一工程は材料の調製であって、加圧ニーダー、バンパリーミキサー、二本ロール、単軸または二軸押出機などの混練装置によっ

て、熱可塑性高分子、エチレン- α オレフィン-ジエン共重合体、オルガノハイドロジエンポリシロキサンなどの混合がなされる。その際の温度条件は、熱可塑性高分子の流動開始温度以上の温度条件であることを要するので、最低でも80°Cでの混練の履歴を必要とし、上限は材料の耐久性を考慮すると高くとも300°C以下であるから、80~300°Cの範囲、特には180~250°Cの範囲がよい。

【0078】第二工程は、混合物を動的架橋するプロセスであり、架橋反応に必要な熱履歴(温度と時間の積)と高剪断による動的環境を与えることによってなされる。そして、生成されるドメインの粒径は、動的条件としての剪断に依存し、最大剪断速度が50sec⁻¹未満ではドメインの形成が乏しく、2,000sec⁻¹を超えると装置の耐久性を上回ってしまうので、50~2,000sec⁻¹の最大剪断速度で、温度条件は、第一工程と同様に80~300°Cの範囲とするのがよい。この工程で使用する混練装置は、より高い最大剪断速度を与える能力がある二軸押出機が最適である。その際、充満率が30~40%を超える条件のもののがよい。

【0079】本発明に用いるオレフィン系熱可塑性エラストマーは、ヒドロシリル化触媒を必要とするが、この触媒を投じる工程は第一工程でも第二工程でもよい。第一工程で投入する場合、混合物の温度に注意を払う必要があるが、第二工程で投入するのであれば、その必要はないので、第二工程で投入する方が合理的である。ヒドロシリル化触媒の添加方法としては、該触媒を溶媒に分散、溶解等させたり、無機または有機系粉末に含ませて投入する方法が挙げられる。

【0080】本発明に用いるオレフィン系熱可塑性エラストマーは、好適処方として、(a-1)~(a-3)成分や、(b-1)~(b-4)成分による反応の促進効果を利用していいるが、これらの成分を投じる工程も、ヒドロシリル化触媒と同様に第二工程での投入が望ましい。そして、上記成分の添加方法も、ヒドロシリル化触媒の場合と同様の方法が挙げられる。

【0081】上記のオレフィン系熱可塑性エラストマーの製造方法は、上記二つの工程をそれぞれ別個で行ってもよいし、1つの装置にて一括で行うこともできる。例えば、二軸押出機の各ゾーンで軸のセグメント(軸の形状)や温度条件を変えて、順次に材料を投入すればよいし、ニーダーやバンパリーミキサーまたは二軸押出機で第一工程を行ってから、別の二軸押出機で第二工程を行ってもよく、任意である。また、オレフィン系熱可塑性エラストマーの製造時や成形時での動的熱履歴を考慮しての抗酸化剤、耐候性や耐久性を向上させるための安定剤、導電性、難燃性および摺動性を付与するためのフィラーや添加剤、または着色剤などの添加が必要であるならば、第一工程または第二工程で配合するのがよいが、第三の工程を設けて投入する方法もある。さらに、三重

結合炭素をもつ化合物や環状ポリシロキサンなどを代表とするヒドロシリル化反応の遮延剤と併用して反応速度を調整することもできる。

【0082】上記の製造方法により得られたオレフィン系熱可塑性エラストマーは、バルク状、ペール状、シート状、ベレット状、粉末状などに調製され、最終段階として、成形工程を経て、本発明の自動車用外装部品が得られる。以下に、本発明の自動車用外装部品への成形方法を詳細に述べる。なお、本発明の自動車用外装部品に用いるオレフィン系熱可塑性エラストマーは、ヒドロシリル化反応により作製されるものであり、オルガノハイドロジエンポリシロキサンとヒドロシリル化触媒を失効させない限りは、オレフィン系熱可塑性エラストマー生産時の動的架橋を終えた後にも残留ジエンが低減されるので、耐候性に優れることになる。

【0083】既に述べたように、自動車用外装部品は表皮層と機能部分および本体から構成されるが、本発明に係る自動車用外装部品は、表皮層を構成する高分子組成物を請求項1～7に述べる内容の熱可塑性エラストマーに特定したものである。したがって、機能部分および本体を構成する素材については限定がなく任意に選択することができる。例えば、架橋ゴム、エチルノルボルネンをジエン成分としたオレフィン-エチレン-ジエン共重合体からなる熱可塑性エラストマー、バーオキサイドで架橋した熱可塑性エラストマー、ヒドロシリル化反応で架橋した熱可塑性エラストマーなど、さまざまな素材を選択することができる。

【0084】本発明の自動車用外装部品は、押出成形、射出成形、回転成形、プレス成形、カレンダー成形、ブロー成形など、材料がもつ熱可塑性的性質を利用して、任意の形状に成形することによって得られるが、押出成形によって作製するのが望ましい。

【0085】自動車用外装部品のうち、光沢、色彩、凹凸による意匠を付与した部品や、ガラスとの接触部分に要する摺動性などの表面特性に関する機能をもつ部品は、これらの機能を有する表皮層と内部を構成する本体との複合体である場合や、幾種類かの異なった特性の高分子組成物により構成されている場合がある。そのような場合、本発明では、例えば、着色顔料の添加、非結晶性高分子などの光沢を向上させる材料の添加、粒子などの光沢を低減させる材料の添加、シリコーン系オリゴマーなどの他のシリコーン系化合物、摺動性を付与する粒子などの材料の添加を適宜施すことができる。なお、本発明の自動車用外装部品は、表皮層だけでなく、内部を構成する本体も前記したオレフィン系熱可塑性エラストマーで構成されていることが望ましい。

【0086】また、ウェザーストリップなどの自動車用外装部品には、芯材として金属を用いたり、表皮層にナイロン繊維などによる植毛を施すことができる。この場合、異種材料との複合となるので、プライマーなどの部

材を用いたり、前記したオレフィン系熱可塑性エラストマーに接着性を付与してもよい。

【0087】以下に、本発明の自動車用外装部品の製法を一部例示する。モジュラーウィンドモール(図1)は、ガラス窓を構成する高分子(表皮層)1にガラスからなる本体2が固定されており、自動車には、図6に示すように、接着剤3によってボディー鋼板4に装着される。本部品で使用する上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、射出成形機を用いて、インサート法によって作製される。

【0088】サイドモール(図2)は、表皮層1が鉄やPOMからなる芯材2と一体化されており、自動車には、図7に示すように、ボディー鋼板4にめ込むことで装着される。本部品で使用する上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、押出機によって作製される。なお、現行のサイドモールの表皮層1は、ボディーの光沢と同調させるために、塗装を施すことがあるが、本発明で使用する請求項4記載内容のオレフィン系熱可塑性エラストマーは、光沢特性に優れているので、その必要はない。

【0089】フラッシュマウントモール(図3)は、鋼鉄線と高分子からなる本体2に表皮層1が形成されており、図8に示すように、ボディー鋼板4にガラス板5をめ込むための部品である。なお、ガラス板5は接着剤3によって脱落が防止される。本部品で使用する上記オレフィン系熱可塑性エラストマーは、表皮層1を構成する高分子組成物として用いることが必須であるが、本体2に使用することもできる。本部品は、サイドモールと同様に押出機によって作製される。また、サイドモールと同様に、光沢を発現することが望まれるので、光沢特性に優れている請求項4記載内容のオレフィン系熱可塑性エラストマーの使用が最適である。

【0090】ルーフモール(図4)およびウインドモール(図5)は、表皮層1がステンレスからなる芯材2と一体化されており、ルーフモールは図9に示すように、溶接によって固定され、ウインドモールは図10に示すように、ボディー鋼板4にめ込むことで装着がなされる。本部品は、サイドモールと同様に押出機によって作製される。また、サイドモールと同様に、光沢を発現することが望まれるので、光沢特性に優れている請求項4記載内容のオレフィン系熱可塑性エラストマーの使用が最適である。

【0091】

【実施例】次に具体的に実施例を挙げるが、本発明はこの実施例の記載に限定されるものではない。なお、実施例、比較例により得た高分子系組成物の評価方法は下記の通りである。硬度はJIS K 6253(ショアA)、伸び、破断強度はJIS K 6251、圧縮永久歪はJIS K 6262、反発弹性はJIS K 6255の引張破断強度記載の方法に従った。

【0092】(実施例1、比較例1)表1に示す3種類のEPDM100重量部それぞれに、ポリプロピレン(出光石油

化学社製、2000C、商品名)10重量部、ポリエチレン(三井化学社製、ハイゼックス6800、商品名)10重量部、パラフィン系プロセスオイル(三井化学社製、ルーカント200、商品名)10重量部、湿式シリカ(日本シリカ工業社製、ニップシルLP、商品名)15重量部、抗酸化剤(旭電化工業社製、AO-60、商品名)1重量部、オルガノハイドロジェンポリシロキサン(信越化学工業社製、KE-1950A、商品名)10重量部を、150°Cに温度調節した加圧ニーダーに投入して30rpmで10分間混練し、さらに、ポリブロビレン(出光石油化学社製、2000C、商品名)30重量部と黒色顔料2重量部を添加し、10分間混練して3種類の混練物1-1、1-2、1-3を得た。そして、これらの混練物を二軸押出機(温度200°C、300rpm、剪断速度は約1,200sec⁻¹、200ppmの白金量である塩化白金酸をペント孔から滴下)に投入して動的架橋したところ、混練物1-1、1-2、1-3から3種類の熱可塑性エラストマーを得た。そして、それぞれの成形性と物性について評価したところ、表2に示すとおりであった。そして、上記試験によって得られた硬度Aを、下記の数式6に代入してXを算出し、破断強度(Ts)と比較したと *20

10

| EPDMの種類 | EPDM-1 | EPDM-2 | EPDM-3 |
|------------------|--------|-----------|-----------|
| ムーニー粘度 1+4 100°C | 83 | 80 | 81 |
| エチレンの含有量 [wt%] | 61 | 59 | 62 |
| ジエンの種類 | ENB | ENB/VNB | ENB/VNB |
| モル分率 | 1.00 | 0.67/0.33 | 0.33/0.67 |
| ジエンの含有量 [wt%] | 5.2 | 5.1 | 5.0 |

【0094】

※※【表2】

| 項目 例 | 比較例1-1 | 実施例1-1 | 実施例1-2 |
|----------|--------|--------|--------|
| 混練物番号 | 1-1 | 1-2 | 1-3 |
| 押出成形性 | × | ○ | ○ |
| プレス成形性 | △ | ○ | ○ |
| 硬度 A/10秒 | 50 | 63 | 64 |
| 伸び % | 572 | 501 | 523 |
| 破断強度 MPa | 5.6 | 11.2 | 11.9 |

【0095】

★★【表3】

| 項目 例 | 比較例1-1 | 実施例1-1 | 実施例1-2 |
|-----------|--------|--------|--------|
| X | 9.5 | 11.0 | 11.0 |
| Ts (破断強度) | 5.6 | 11.2 | 11.9 |
| TsとXの比較 | X > Ts | Ts = X | Ts > X |

【0096】

☆☆【表4】

| 項目 例 | 比較例1-1 | 実施例1-1 | 実施例1-2 |
|----------|--------|--------|--------|
| 硬度 A/10秒 | 55 | 65 | 64 |
| 伸び % | 272 | 487 | 501 |
| 破断強度 MPa | 2.6 | 10.8 | 11.3 |

【0097】(実施例2)二台の押出機(押出機A、押出機B)が、1つのダイによって連結されてなる製造ラインにおいて、押出機Aには実施例1-1の熱可塑性エラストマーのペレットを、押出機Bには実施例1-2の

熱可塑性エラストマーのペレットを投入して、図3の断面図に示すフラッシュマウントモールを作製した。得られたフラッシュマウントモールは、表皮層1が実施例1-1の熱可塑性エラストマーで、本体2は実施例1-2

35

の熱可塑性エラストマーで構成されていた。上記のフラッシュマウントモールを約50mmの長さに切断して、80°Cの環境下でカーボンアーク光に1,500時間暴露した。そして、目視によって、暴露したフラッシュマウントモールの表皮層1を観察したところ、暴露しなかったフラッシュマウントモールに対して外観の変化はほとんど確認できなかった。よって、本発明による外装部品は、耐候性に優れたものであることが確認された。

【0098】(比較例2) 実施例2の製造ラインにおいて、押出機Aには比較例1-1の熱可塑性エラストマーのペレットを、押出機Bには実施例1-2の熱可塑性エラストマーのペレットを投入して、図3の断面図に示すフラッシュマウントモールを作製した。得られたフラッシュマウントモールは、表皮層1が比較例1-1の熱可塑性エラストマーで、本体2は実施例1-2の熱可塑性エラストマーで構成されていた。上記のフラッシュマウントモールを約50mmの長さに切断して、80°Cの環境下でカーボンアーク光に1,500時間暴露した。そして、目視によって、暴露したフラッシュマウントモールの表皮層1を観察したところ、微細なヒビが無数に存在し、しかも白化していた。

【0099】(実施例3、比較例3) 表1に示すENB系EPDMであるEPDM-1と、表5に示すVNB系EPDMであるEPDM-4から、実施例1、比較例1と同様の方法で混練して、表6に示す7種類の混練物3-1~3-7を得た。そして、二軸押出機(温度200°C、300rpm、剪断速度は約1,200sec⁻¹、20ppmの白金量である塩化白金酸をペント孔から滴下)で動的架橋して7種類の熱可塑性エラストマーを得た。そして、それぞれの成形性と物性についての評価結果を表7に示す。その結果、混練物3-1から得た比較例3-1は、触媒量が不足していたので、充分*

10

20

30

36

*に架橋していないことを示す物性であった。混練物3-7から得た比較例3-2は、破断強度や伸びなど機械的物性は低く、成形性も良くなく、しかも、ゲル状のブツがあり外観が悪かった。この不具合は、反応が速すぎて構造形成が未発達であることに起因し、熱可塑性成分が機能せず機械的物性が劣ると考察できる。一方、本発明の処方による熱可塑性エラストマー(実施例3-1、3-2、3-3、3-4、3-5、3-6)は、弾性的物性や機械的物性が優れ、成形性や外観も良いものであった。したがって、本発明の処方に従えば、VNB系EPDMを使用しても、構造形成への弊害は起こらず、優れた物性を得ることができる。そして、上記試験によって得られた硬度Aを、式6に代入しXを算出して、破断強度(Ts)と比較したところ、表8に示すとおりであった。同表より、比較例3-1、3-2はX>Tsで、あまり物性に優れたものではなかった。一方、実施例3-1、3-5はTs=Xであったことから、塩素系高分子組成物と同等であると評価できた。また、実施例3-2、3-3、3-4はTs>Xであることから塩素系高分子組成物に勝る物性を有することが確認できた。

【0100】

【表5】

| EPDMの種類 | EPDM-4 |
|------------------|--------|
| ムーニー粘度 1+4 100°C | 83 |
| エチレンの含有量 [wt%] | 61 |
| ジエンの種類 | VNB |
| モル分率 | 1.00 |
| ジエンの含有量 [wt%] | 5.2 |

【0101】

【表6】

| 配合内容 | 混練物番号 | 重量部 | | | | | | |
|----------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| | | 3-1 | 3-2 | 3-3 | 3-4 | 3-5 | 3-6 | 3-7 |
| EPDM-1 | 95 | 90 | 70 | 50 | 30 | 5 | 3 | |
| EPDM-4 | 5 | 10 | 30 | 50 | 70 | 95 | 97 | |
| PP | 10 | 10 | 10 | 10 | 10 | 10 | 10 | |
| PE | 10 | 10 | 10 | 10 | 10 | 10 | 10 | |
| シリカ | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | 15 | |
| A0-60 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | |
| KE-1950A | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | |
| 黒顔料 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | |
| 合計 | 143 | 143 | 143 | 143 | 143 | 143 | 143 | |

【0102】

【表7】

| 項目例 | 比較例 3-1 | 実施例 3-1 | 実施例 3-2 | 実施例 3-3 | 実施例 3-4 | 実施例 3-5 | 比較例 3-2 |
|----------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|
| 混練物番号 | 3-1 | 3-2 | 3-3 | 3-4 | 3-5 | 3-6 | 3-7 |
| 押出成形性 | X | △ | ○ | ○ | ○ | △ | X |
| プレス成形性 | △ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | △ |
| 硬度 A/10秒 | 52 | 57 | 62 | 62 | 62 | 60 | 65 |
| 伸び % | 1055 | 571 | 513 | 514 | 517 | 301 | 188 |
| 破断強度 MPa | 3.6 | 8.6 | 12.4 | 11.7 | 11.5 | 10.1 | 6.1 |

【0103】

**【表8】

| 項目例 | 比較例 3-1 | 実施例 3-1 | 実施例 3-2 | 実施例 3-3 | 実施例 3-4 | 実施例 3-5 | 比較例 3-2 |
|-----------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| X | 6.0 | 8.5 | 11.0 | 11.0 | 11.0 | 10.0 | 12.5 |
| T _s (破断強度) | 3.6 | 8.6 | 11.4 | 11.7 | 11.5 | 10.1 | 6.1 |
| XとT _s の比較 | X > T _s | X ≈ T _s | T _s > X | T _s > X | T _s > X | X ≈ T _s | X > T _s |

【0104】(実施例4、比較例4) 180°Cに温度調節した加圧型の混練装置(ラボプラストミル、商品名、東洋精機社製、容量は50cc)に、表9の内容の材料を投入し、15分間混練した後に、表10記載の10種類の化合物を同表記載の重量部で投入し、さらに30秒後、20ppmの白金量である塩化白金酸を投入してから7分間混練して、10種類の混練物を得た。そして、それぞれ成形性と物性についての評価結果を表11に示す。なお、添加した表10の化合物について説明しておくが、同表中、成分の分類とは請求項2記載のa-1、a-2、a-3のいずれかに該当するかを示す。比較例4-1に使用した化合物は、請求項2の内容に該当しないものを選択している。上記試験の結果、実施例4-1、4-2、4-3、4-4、4-5、4-6、4-7、4-8、4-9はいずれも触媒を投入した直後からトルクの上昇が開始され、2～3分後に最大値(触媒投入時の1.5～1.8倍のトルク)を呈し、4～5分後には投入以前の水準に下降して、以降ほとんどトルク値の変化がなかった。一方、比較例4-1は、0.5～1分の間に、トルクの上昇最大値(触媒投入時の1.4倍のトルク)を観測したが、投入以前の水準に下降して、以降ほとんどトルク値の変化がなかった。その結果、実施例4-1、4-2、4-3、4-4、4-5、4-6、4-7、4-8、4-9は、弾性的物性や機械的物性が優れ、成形性や外観も良いものであった。したがって、本発明の処方に従えば、VNB系EPDMを使用しても、構造形成への弊害は起こらず、優れた物性を得ることができる。なお、触媒を投入した後にトルクの上昇の推移からも、上記構造形成のプロセスが伺われる。一方、比較例4-1は、破断強度や伸びなど機械的物性

は低く、成形性も良くなく、しかも、ゲル状のブツがあり外観が悪かった。この不具合は、反応が速すぎて構造形成が未発達であることに起因し、熱可塑性成分が機能せず機械的物性が劣ると考察できる。なお、触媒を投入した後にトルクの上昇の推移からも、上記構造形成のプロセスが伺われる。そして、上記試験によって得られた硬度Aを、式6に代入しXを算出して、破断強度(T_s)と比較したところ、表12に示すとおりであった。同表より、実施例4-1、4-2、4-3、4-4、4-5、4-6、4-7、4-8、4-9は、T_s>Xであって、塩素系高分子組成物に勝る物性を有することが確認できた。一方、比較例4-1はX>T_sで、あまり物性に優れたものではなかった。

【0105】

【表9】

| 重量部 | |
|----------|-----|
| 配合内容 | |
| EPDM-4 | 100 |
| PP | 30 |
| PE | 10 |
| シリカ | 15 |
| AO-60 | 1 |
| KE-1950A | 5 |
| 黒顔料 | 2 |
| 合計 | 163 |

【0106】

【表10】

| 項目 | 化合物の内容 | | | 添加量 [g] |
|--------|-----------|----------|--------------------|------------|
| | 成分の 分類 | 不飽和基の種類 | 分子中の 不飽和基 の数 | |
| 実施例4-1 | a-1 | アクリロイル基 | 10 | 0.5 |
| 実施例4-2 | a-2 | アクリロイル基 | 15 | 0.5 |
| 実施例4-3 | a-3 | アクリロイル基 | 2 | 0.5 |
| 実施例4-4 | a-1 | アクリロイル基 | 5 | 1.0 |
| 実施例4-5 | a-3 | メタクリロイル基 | 2 | 1.0 |
| 実施例4-6 | a-3 | ビニル基 | 6 | 1.0 |
| 実施例4-7 | a-3 | アリル基 | 6 | 1.0 |
| 実施例4-8 | a-3 | ビニル基 | 150 | 0.1 |
| 実施例4-9 | a-1 | アクリロイル基 | 10 | 0.5 |
| 比較例4-1 | - | なし | 0 | 2.0 |

【0107】

* * 【表11】

| 項目例 | 実施例 4-1 | 実施例 4-2 | 実施例 4-3 | 実施例 4-4 | 実施例 4-5 | 実施例 4-6 | 実施例 4-7 | 実施例 4-8 | 実施例 4-9 | 比較例 4-1 |
|----------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|
| 押出成形性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | × |
| プレス成形性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | △ |
| 硬度 A/10秒 | 78 | 79 | 78 | 77 | 78 | 78 | 77 | 75 | 78 | 79 |
| 伸び % | 625 | 571 | 613 | 614 | 617 | 601 | 588 | 688 | 602 | 254 |
| 破断強度 MPa | 20.3 | 20.7 | 20.4 | 20.1 | 19.7 | 21.0 | 19.9 | 19.5 | 20.8 | 10.1 |

【0108】

* * 【表12】

| 項目例 | 実施例 4-1 | 実施例 4-2 | 実施例 4-3 | 実施例 4-4 | 実施例 4-5 | 実施例 4-6 | 実施例 4-7 | 実施例 4-8 | 実施例 4-9 | 比較例 4-1 |
|-----------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|
| X | 19.0 | 19.5 | 19.0 | 20.1 | 18.5 | 19.0 | 18.5 | 17.5 | 19.0 | 19.5 |
| Ts (破断強度) | 20.3 | 20.7 | 20.4 | 18.5 | 20.1 | 19.7 | 21.0 | 19.9 | 19.5 | 10.1 |
| XとTsの比較 | Ts > X | X > Ts |

【0109】(実施例5、比較例5)表13および表14に示す材料を10分間混練して、11種類の混練物を得た。そして、これらの混練物を二軸押出機(温度200°C、300rpm、剪断速度は約1,200sec⁻¹、200ppmの白金量である塩化白金酸をペント孔から滴下)に投入して動的架橋したところ、11種類の熱可塑性エラストマーを得た。そして、それぞれ成形性と物性について評価したところ、表15に示すとおりであった。そして、上記試験によって得られた硬度Aを、式6に代入しXを算出して、破断強度(Ts)と比較したところ、表16に示すとおりであった。比較例5-1は、X > Tsで、あまり物性に優れたものではなかった。また、破断強度や伸びなど機械的物性は低く、成形性も良くなく、しかも、ゲル状のブツがあり外観が悪かった。この不具合は、反応が速すぎて構造形成が未発達であることに起因し、熱可塑性成分が機能せず機械的物性が劣ると考察できる。実施例5-1、5-2、5-3、5-4、5-5、5-6、5-7、5-8は、Ts > Xで、本発明の処方に従えば、VNB系EPDMを使用しても、構造形成への弊害は起こらず、優れた物性を得ることができ、塩素系高分子組成物に勝る物性を

有することが確認できた。比較例5-2は、添加した高分子が多くて、成形性が良くなかった。また、成形性の不具合が災いして、物性もさほど良くなかった。比較例5-3は、高分子の選択が不適切であり、成形性や物性に悪影響があることがわかった。

【0110】

【表13】

40

| 重量部 | |
|----------|-------|
| 配合内容 | |
| EPDM-4 | 100 |
| PP | 30 |
| 表14の高分子 | α |
| シリカ | 15 |
| AO-60 | 1 |
| KE-1950A | 5 |
| 黒顔料 | 2 |
| 合計 | 153+α |

【0111】

【表14】

50

| 項目 | 高分子の内容 | | | | 添加量=α 【重量部】 |
|--------|--------|---------------------|----------------|-----------------------|----------------|
| | 分類 | 高分子の名称 | 商品名 | メーカー | |
| 比較例5-1 | b-1 | エチレン1-オクテン コポリマー | Engage. EG8100 | ダウ ケミカル カンパニー社 | 0.5 |
| 実施例5-1 | b-1 | エチレン1-オクテン コポリマー | Engage. EG8100 | ダウ ケミカル カンパニー社 | 1.0 |
| 実施例5-2 | b-1 | エチレン1-オクテン コポリマー | Engage. EG8100 | ダウ ケミカル カンパニー社 | 50.0 |
| 実施例5-3 | b-1 | エチレン1-オクテン コポリマー | Engage. EG8100 | ダウ ケミカル カンパニー社 | 100.0 |
| 実施例5-4 | b-1 | エチレン1-オクテン コポリマー | Engage. EG8100 | ダウ ケミカル カンパニー社 | 500.0 |
| 比較例5-2 | b-1 | エチレン1-オクテン コポリマー | Engage. EG8100 | ダウ ケミカル カンパニー社 | 550.0 |
| 実施例5-5 | b-1 | 直鎖エチレン-αオレフィン コポリマー | タフテック SP2040 | 三井化学㈱ | 300.0 |
| 実施例5-6 | b-2 | プロピレン-αオレフィン 共重合体 | REXflex | Huntsman Corporation社 | 100.0 |
| 実施例5-7 | b-3 | ステレン-ブタジエン 共重合体 | ダイナロン1320P | J S R㈱ | 100.0 |
| 実施例5-8 | b-4 | 水素添加ステレン系プロックポリマー | ダイナロン4600P | J S R㈱ | 100.0 |
| 比較例5-3 | - | ポリ塩化ビニル | TK-500 | 信越化学㈱ | 100.0 |

分類は、請求項4記載内容に基づく
添加量は表13のαに対応している

[0112]

* * [表15]

| 項目 例 | 比較例 5-1 | 実施例 5-1 | 実施例 5-2 | 実施例 5-3 | 実施例 5-4 | 比較例 5-2 | 実施例 5-5 | 実施例 5-6 | 実施例 5-7 | 実施例 5-8 | 比較例 5-3 |
|----------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| 押出成形性 | × | △ | ○ | ○ | △ | × | ○ | ○ | ○ | ○ | × |
| プレス成形性 | △ | ○ | ○ | ○ | △ | × | ○ | ○ | ○ | ○ | △ |
| 硬度 A/10秒 | 78 | 79 | 75 | 70 | 65 | 65 | 80 | 70 | 69 | 72 | 72 |
| 伸び % | 325 | 571 | 613 | 714 | 817 | 301 | 688 | 688 | 662 | 554 | 321 |
| 破断強度 MPa | 8.3 | 20.7 | 22.4 | 24.1 | 19.7 | 14.0 | 20.5 | 18.5 | 14.8 | 17.1 | 7.1 |

[0113]

* * [表16]

| 項目 例 | 比較例 5-1 | 実施例 5-1 | 実施例 5-2 | 実施例 5-3 | 実施例 5-4 | 比較例 5-2 | 実施例 5-5 | 実施例 5-6 | 実施例 5-7 | 実施例 5-8 | 比較例 5-3 |
|-----------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| X | 19.0 | 19.5 | 17.5 | 15.0 | 12.5 | 12.5 | 20.0 | 15.0 | 14.5 | 16.0 | 16.0 |
| Ts (破断強度) | 8.3 | 20.7 | 22.4 | 24.1 | 19.7 | 12.3 | 20.5 | 18.5 | 14.8 | 17.1 | 7.1 |
| XとTsの比較 | X > Ts | Ts > X | Ts > X | Ts > X | Ts > X | X > Ts | Ts > X | Ts > X | Ts > X | Ts > X | X > Ts |

[0114] (実施例6) 実施例5-1、5-2、5-3、5-4、5-6、5-7、5-8の熱可塑性エラストマー(TPV)ペレットを、押出機に投入して、図2に示すサイドモールを作製した。得られたサイドモールは、表皮層1が上記の熱可塑性エラストマーによって構成される。そして、得られた8点のサイドモールの光沢度を測定したところ、表17に示すとおりであった。従来のオレフィン系熱可塑性エラストマーの光沢度は10程度であるが、上記8点のサイドモールはいずれも、従来のオレフィン系熱可塑性エラストマーを上回っていた。特に、実施例5-3、5-4、5-6、5-7、5-8か★40

30★ら作製したサイドモールは、光沢度が高く意匠性に優れたものであった。上記のサイドモールを約50mmの長さに切断して、80°Cの環境下でカーボンアーキ光に1,500時間暴露した。そして、目視によって、暴露したサイドモールの表皮層1を観察したところ、暴露しなかったサイドモールに対して外観の変化はほとんど確認できなかった。よって、本発明による外装部品は、耐候性に優れたものであることが確認された。

[0115]

[表17]

| 項目 例 | 実施例 6-1 | 実施例 6-2 | 実施例 6-3 | 実施例 6-4 | 実施例 6-5 | 実施例 6-6 | 実施例 6-7 | 実施例 6-8 |
|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| 使用したTPV | 実施例 5-1 | 実施例 5-2 | 実施例 5-3 | 実施例 5-4 | 実施例 5-5 | 実施例 5-6 | 実施例 5-7 | 実施例 5-8 |
| 光沢度 | 12.0 | 18.5 | 28.1 | 35.7 | 20.1 | 30.3 | 34.5 | 36.4 |

[0116] (実施例7) 実施例5-4の熱可塑性エラストマーペレット100重量部に、表18に示す摺動性を与えるための添加剤を混合してから、押出機に投入して、図6に示すルーフモールを作製した。得られたルーフモールは、表皮層1が上記の熱可塑性エラストマーによって構成される。そして、得られた4点のルーフモー

ルの動的摩擦係数と光沢度を測定したところ、表19のとおりであった。なお、上記の添加剤を配合しないオレフィン系熱可塑性エラストマーからなるルーフモールは、動的摩擦係数が1.26であったが、実施例7-1、7-2、7-3、7-4は、いずれも摺動性が改質されてなるものであった。また、いずれも光沢度が30を上回り、

意匠性にも優れたものであった。上記のサイドモールを約50mmの長さに切断して、80°Cの環境下でカーボンアーキ光に1,500時間暴露した。そして、目視によって、暴露したサイドモールの表皮層1を観察したところ、暴露しなかったサイドモールに対して外観の変化はほとんど*

*確認できなかった。よって、本発明による外装部品は、耐候性に優れたものであることが確認された。

【0117】

【表18】

| 項目 | 接着材の内容 | | | 添加量=α [重量部] |
|--------|------------------|-----------|----------|----------------|
| | 接着材の名称 | 商品名 | メーカー | |
| 実施例7-1 | シリコーンオイル | KF-96 | 信越化学工業㈱ | 1.0 |
| 実施例7-2 | アクリルシリコーン | シャリース R | 日信化学工業㈱ | 20.0 |
| 実施例7-3 | シリコーン変性ポリエチレン | BY-27-202 | 東レシリコーン㈱ | 3.0 |
| 実施例7-4 | シリコーン変性ポリメタクリレート | BY-202M | 東レシリコーン㈱ | 3.0 |

【0118】

【表19】

| 項目 | 実施例6-1 | 実施例6-2 | 実施例6-3 | 実施例6-4 | 無添加 |
|--------|--------|--------|--------|--------|------|
| 動的摩擦係数 | 0.25 | 0.09 | 0.09 | 0.10 | 1.27 |
| 光沢度 | 36.2 | 30.7 | 34.4 | 33.7 | 35.7 |

【0119】

【発明の効果】本発明によれば、ハロゲン系高分子組成物と同等またはそれ以上の機械的性をもち、しかも、この機械的性を長期にわたり保持しうる耐久性および耐候性を有するといった信頼性の高いオレフィン系熱可塑性エラストマーで構成された自動車用外装部品を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】モジュラーウィンドモールの断面図である。
【図2】サイドモールの断面図である。

20 【図3】フラッシュマウントモールの断面図である。

【図4】ルーフモールの断面図である。

【図5】ウインドモールの断面図である。

【図6】モジュラーウィンドモールを自動車に装着した状態を示す図である。

【図7】サイドモールを自動車に装着した状態を示す図である。

【図8】フラッシュマウントモールを自動車に装着した状態を示す図である。

【図9】ルーフモールを自動車に装着した状態を示す図である。

【図10】ウインドモールを自動車に装着した状態を示す図である。

【符号の説明】

- | | |
|----------|----------|
| 1…表皮層 | 4…ボディー鋼板 |
| 2…本体（芯材） | 5…ガラス板 |
| ※ 3…接着材 | 6…ドア鋼板 |

【図1】

【図2】

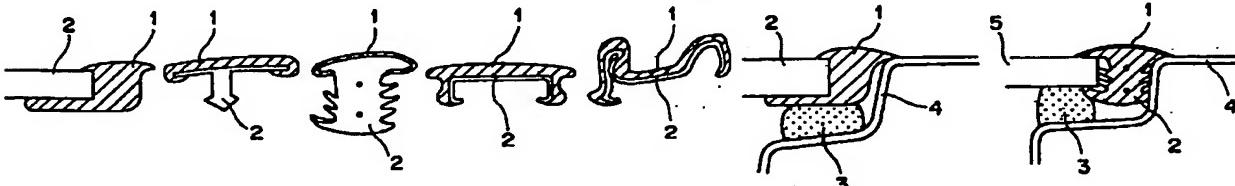
【図3】

【図4】

【図5】

【図6】

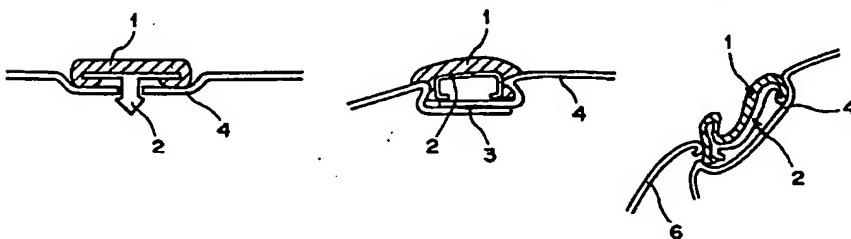
【図8】



【図7】

【図9】

【図10】



フロントページの続き

| (S1)Int.CI. | 識別記号 | F I | テーマコード(参考) |
|-------------|---|---|---|
| C 0 8 L | 83/05 | C 0 8 L | 83/05 |
| | 83/06 | | 83/06 |
| | 83/07 | | 83/07 |
| | 101/00 | | 101/00 |
| (72)発明者 | 吉田 仲次郎 埼玉県さいたま市吉野町1丁目406番地1 信越ポリマー株式会社東京工場内 | F ターム(参考) | 3D023 AA01 AB01 AC01 AD05 AD22 4F100 AA20 AB03B AG00B AK01A AK02A AK03A AK04 AK07 AK13A AK25A AK52A AK62A AK66A AK75 AK75A AL02A AL05A AL09A AT00B BA02 CA06 EH17 EJ05A GB32 JB16A JK01 JK02 JK03 JK07 JK08 JK12A JL00 JL01 JL09 YY00A |
| (72)発明者 | 野田 修康 埼玉県さいたま市吉野町1丁目406番地1 信越ポリマー株式会社東京工場内 | 4J002 BB01W BB03W BB05W BB07W BB12W BB14W BB15W BB15X BB17S BB20W BB21W BB22W BG055 BP02W CP04Y CP144 CP164 EH076 ET006 EU196 FD146 GN00 | |
| | | 4J100 AA01Q AA02P AA03Q AS15R CA05 HAS3 HC34 HC63 JA28 | |